

氏 名 栗原 康浩

授与した学位 博士

専攻分野の名称 学 術

学位授与番号 博甲第3680号

学位授与の日付 平成20年 3月25日

学位授与の要件 環境学研究科資源循環学専攻

(学位規則第5条第1項該当)

学位論文の題目 DEVELOPMENT OF HIGH PERFORMANCE MATERIALS OF LIQUID
CRYSTALLINE AROMATIC POLYESTERS

(芳香族液晶ポリエステルによる高性能材料の開発)

論文審査委員 教授 木村 邦生 教授 坪井 貞夫 准教授 高口 豊

学位論文内容の要旨

携帯機器を始めとする情報通信関連の電子回路基板やITSを始めとする自動車関連の電子回路基板には、信号の高速化、パターンの高密度化や高多層化が求められている。この要求を高度に満たすことのできる材料として、液晶性芳香族ポリエステル(LCP)フィルムが注目されている。しかしながら、LCPフィルムを基板材料として利用する際には、以下の2つの問題がある。回路が形成されたLCPフィルムは、熱硬化系接着材でガラスクロス／エポキシ材や他の基板用材料に接着される。また、多層回路基板の絶縁層としてLCPフィルムが使用される際には、熱融着によるLCPフィルム間の接着が必要となる。この際、LCPフィルム表面は極性が低く、表面自由エネルギーも低いために、初期の接着強度だけではなく、長期接着信頼性にも劣るという問題がある。2番目の問題は、LCPフィルム内で発生するスキーンコア構造により内部剥離が起こってしまいフィルムの強度が低いことである。これは、フィルム表層部と内部とで分子鎖の配向程度に差が生じることによって引き起こされる。表層部での高い分子鎖配向を緩和することによる構造の不均一化の解消によって問題を解決することができ、そのためにはフィルム製膜時に高性能ポリマーフィラーを添加する必要がある。LCPの構成単位の一つで構成され、剛直構造からなるpoly(*p*-oxybenzoyl)(POB)が要求基本特性を低下させずに配向緩和を達成できる最適な材料であると期待されるが、このPOBは不溶不融性であり成形性に著しく乏しいためにフィラーとして利用することができない。合目的な高次構造制御術を開発する必要がある。そこで本論文では、LCPフィルムの高機能化材料の開発を目指して、(1)真空プラズマ処理によるLCPフィルムの接着性向上のための新しい表面改質方法の開発と、(2)ポリマーの成形性に影響を受けない重合結晶化法を用いたPOBフィラーの調製法の開発を目的とした。

第1章と第2章では、LCPフィルムと熱硬化系接着材であるエポキシ系接着材及び、熱融着によるLCPフィルム間の初期接着性と長期接着信頼性を向上するために、ガス圧力、プラズマモード、ガス種の効果に注目して、真空プラズマ処理によるLCPフィルム表面への表面改質を検討した。その結果、接着性が大幅に改善される表面処理条件を見だし、その接着性発現のメカニズムを解明することができた。第3章では、アシル基の異なった4-acyloxybenzoic acidの重合によりオリゴマー末端基の化学構造がPOBの高次構造に与える影響について検討し、オリゴマーの相分離を利用することによって針状結晶、板状結晶、ならびに表面に針状結晶がある真球状異形微粒子などが調製できることを明らかにした。末端基構造を変化させることにより合目的な高次構造を創り出す手法を確立した。

以上の研究により、LCPフィルムが抱える基本的かつ重大な問題に対してその解決法を提案することができ、LCPフィルムの高機能材料化への可能性を見出すことができた。

論文審査結果の要旨

最近の携帯機器を始めとする情報通信関連の電子回路基板、ITSを始めとする自動車関連の電子回路基板には、信号の高速化、パターンの高密度化や高多層化がますます求められている。この要求を高度に満たすことのできる材料として全芳香族ポリエステルからなる液晶ポリエステル(LCP)フィルムが注目されているが、LCPフィルムは接着性に乏しく、また、平面方向に高度に分子鎖が配向しているためにスキナーコア構造となってしまう層間強度が弱いという本質的な問題がある。

本研究では、LCPフィルムの接着性向上を目的として、真空プラズマ処理による接着性向上とフィルム内スキナーコア構造の解消を目指した芳香族ポリエステルフィラーの調製を検討した。

LCPフィルムと熱硬化系接着材であるエポキシ系接着材及び、熱融着によるLCPフィルム間の初期接着性と長期接着信頼性を向上するために、ガス圧力、プラズマモード、ガス種の効果に注目して、真空プラズマ処理によるLCPフィルム表面への表面改質を検討した。その結果、接着性が大幅に改善される表面処理条件を見いだし、その接着性発現のメカニズムを解明することができた。また、平面方向の分子鎖配向を緩和させ層間の強度を向上させるために添加する高性能ポリマーフィラーとしてpoly(*p*-oxybenzoyl)の高次構造制御を検討し、オリゴマー末端基の化学構造を変えることによって、針状や板状の結晶から微粒子まで合目的な高次構造を創り出した。

以上の研究により、芳香族液晶ポリエステルに関する高機能化材料の開発として、真空プラズマ処理による回路基板用材料に適した高接着性LCPフィルムと、LCPフィルムの構造均質性を引き出すための芳香族ポリエステルフィラーとして重合反応誘起型オリゴマー結晶化により目的に見合ったモロフォロジーを有するポリマーフィラーを調製する手法を提案することができた。よって、本論文は博士(学術)の学位論文に値するものと認める。